



日本国特許庁

PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日

Date of Application:

2000年 5月24日

出願番号

Application Number:

特願2000-152965

出願人

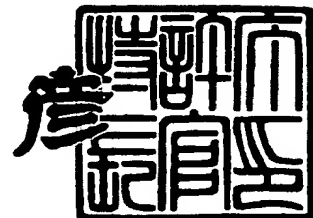
Applicant (s):

東洋紡績株式会社
豊田合成株式会社

2000年 6月29日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

近藤隆彦



出証番号 出証特2000-3053805

【書類名】 特許願

【整理番号】 00-216

【提出日】 平成12年 5月24日

【あて先】 特許庁長官 近藤 隆彦 殿

【国際特許分類】 C08L 67/02

【発明者】

【住所又は居所】 滋賀県大津市堅田二丁目1番1号 東洋紡績株式会社
総合研究所内

【氏名】 葭原 法

【発明者】

【住所又は居所】 滋賀県大津市堅田二丁目1番1号 東洋紡績株式会社
総合研究所内

【氏名】 小杉 仁志

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県名古屋市中区栄3丁目2番3号 東洋紡績株式会
社 名古屋支社内

【氏名】 大上 研二郎

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県名古屋市中区栄3丁目2番3号 東洋紡績株式会
社 名古屋支社内

【氏名】 中村 英弘

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県西春日井郡春日町大字落合字長畑1番地 豊田合
成株式会社内

【氏名】 小笠原 豊

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県西春日井郡春日町大字落合字長畑1番地 豊田合
成株式会社内

【氏名】 尾形 正裕

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県西春日井郡春日町大字落合字長畑 1 番地 豊田合成株式会社内

【氏名】 渡辺 悟

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県西春日井郡春日町大字落合字長畑 1 番地 豊田合成株式会社内

【氏名】 小泉 順二

【特許出願人】

【識別番号】 000003160

【氏名又は名称】 東洋紡績株式会社

【特許出願人】

【識別番号】 000241463

【氏名又は名称】 豊田合成株式会社

【代理人】

【識別番号】 100102211

【弁理士】

【氏名又は名称】 森 治

【選任した代理人】

【識別番号】 100056800

【弁理士】

【氏名又は名称】 林 清明

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 028727

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9503780

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 エンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 ポリエチレンテレフタレート系重合体（A）100重量部に対して、無機強化材料（B）5～70重量部、メルトフローレートが5以下のポリエチレン系重合体（C）2～20重量部、メルトフローレートが5～100のポリプロピレン系重合体（D）3～20重量部を含有するポリエステル系樹脂組成物であって、曲げ破壊歪みが3.5%以上、荷重たわみ温度が180℃以上であることを特徴とするエンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物。

【請求項 2】 ポリエチレンテレフタレート系重合体（A）がゲルマニウムを含有することを特徴とする請求項 1 記載のエンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、エンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物、特に自動車や自動二輪車などのエンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物に関するものであり、特に成形性、外観がよく、耐衝撃性、軽量性、耐熱性、低そり性、防音性などが要求されるエンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

これまで、エンジン周辺部品の一例としてエンジンカバーは、自動車のエンジンの上部にセットされ、エンジンと配線や配管との接触防止や防音の作用を持つ部品であり、エンジンのエンブレムも兼ねている。そして、従来、自動車や自動二輪車などのエンジン周辺部品には、ポリプロピレン系樹脂やポリアミド系樹脂などの合成樹脂製のものが使用されていた。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】

上記従来のエンジン周辺部品用樹脂組成物には、輸送用機械のエンジンルームをコンパクトに設計する場合、ポリプロピレン系樹脂製のエンジン周辺部品の耐熱性では溶融や変形がおこる可能性がある。また、ポリアミド系樹脂製のエンジン周辺部品の場合は、使用時吸水による寸法変化があり、装着位置などの条件が狭く問題であった。また、エンジンルーム内は120℃以上の高温になるため、エンジン周辺部品が変色するという問題があった。

【0004】

本発明は、上記従来のエンジン周辺部品用樹脂組成物の有する問題点を解決し、成形性、外観に優れ、耐衝撃性、軽量性、耐熱性、低そり性、防音性を有し、熱による変色や吸水による寸法変化が小さいエンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物を提供することを目的とする。

【0005】

【課題を解決するための手段】

上記目的を達成するため、本発明のエンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物は、ポリエチレンテレフタレート系重合体(A)100重量部に対して、無機強化材料(B)5～70重量部、メルトフローレートが5以下のポリエチレン系重合体(C)2～20重量部、メルトフローレートが5～100のポリプロピレン系重合体(D)3～20重量部を含有するポリエステル系樹脂組成物であって、曲げ破壊歪みが3.5%以上、荷重たわみ温度が180℃以上であることを特徴とする。

【0006】

ここで、曲げ破壊歪みは、射出成形により成形したテストピース(13.0×127.0×6.4mm)をASTM-D-790にて23℃の温度下で曲げ試験を行い、破壊時のたわみ量から最外層の歪みを計算して得た歪みを曲げ破壊歪みとした値(%)、荷重たわみ温度は、射出成形により成形したテストピース(13.0×127.0×6.4mm)をASTM-D-648にて0.46MPaの荷重下で測定した温度(℃)である。

【0007】

また、本発明のポリエステル系樹脂組成物を用いるエンジン周辺部品としては、エンジンカバー、シリンダーヘッドカバー、エアインテークパイプ、オイルパン、タイミングベルトカバー、インテークマニホールド、フィラーキャップ、スロットルボディ、クーリングファンなどを挙げることができる。

【 0 0 0 8 】

上記の構成からなる本発明のエンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物は、成形性、外観に優れ、耐衝撃性、軽量性、耐熱性、低そり性、防音性を有し、熱による変色や吸水による寸法変化が小さい。

【 0 0 0 9 】

この場合、ポリエチレンテレフタレート系重合体（A）がゲルマニウムを含有することができる。

【 0 0 1 0 】

【発明の実施の形態】

以下、本発明のエンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物の実施の形態を説明する。

【 0 0 1 1 】

本発明においてポリエチレンテレフタレート系重合体（A）は、ポリエチレンテレフタレート又はエチレンテレフタレート系共重合体のことを云い、エチレンテレフタレート系共重合体としては、エチレングリコール以外に、グリコール成分としてポリプロピレングリコール、ブタンジオール、ヘキサメチレングリコール、ネオペンチルグリコール、シクロヘキサンジメタノール、ジエチレングリコール、ポリエチレングリコール、ポリテトラメチレングリコール、ポリラクトンなどが挙げられる。また、テレフタル酸以外の酸成分としては、公知の酸成分が共重合できる。例えば、ナフタレンジカルボン酸、イソフタル酸、アジピン酸、セバシン酸などが使用される。共重合成分が20モル%を超えると耐熱性や結晶性が低下するので、エンジン周辺部品の用途には好ましくない。

【 0 0 1 2 】

また本発明においては、ゲルマニウム触媒により重合したポリエチレンテレフタレート系重合体は深みのある外観が得られ商品性の点から好ましく、この場合

、通常 1 ～ 5 0 0 p p m のゲルマニウムを含有するのが好ましい。また、ペットボトル回収レジンなどのリサイクル品も使用できるが、一般的にはこれらのポリエチレンテレフタレート系重合体は、高分子量に設計されている場合が多く、そのときは結晶性や流動性が低く射出成形用に適さないことがある。なお、本発明のエンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物を使用すると、エンジンカバーのような大型部品用成形材料として使用が可能になっているのも本発明の特徴のひとつである。

【 0 0 1 3 】

本発明においては、無機強化材料（B）を、ポリエチレンテレフタレート系重合体（A）100重量部に対して5～70重量部、好ましくは10～50重量部、特に好ましくは10～30重量部配合する。無機強化材が5重量部より少ないと寸法安定性や高温での剛性が不足する。また、無機強化材が70重量部を超えると耐衝撃性が低下したり、エンジン周辺部品の単位重量が増加し、輸送用機械の燃費が低下するので好ましくない。本発明において用いる無機強化材としては、少量の添加量で成形品の寸法安定性が得られ、外観も良好な無機強化材が好ましくタルク、ガラスビーズ、シリカ、マイカ、炭酸カルシウム、ワラストナイト、カオリン、クレー、ガラス繊維、炭素繊維などの無機強化材の1種又はこれらの組み合わせが好ましいが、タルクとガラス繊維の組み合わせが特に好ましい。また、これらの無機強化材はポリエチレンテレフタレート系重合体との接着性向上、すなわち、成形品の強度や耐衝撃性向上のためシランカップリング剤やチタネート系カップリング剤などを使用してもよい。

【 0 0 1 4 】

また、本発明においては、メルトフローレートが5以下のポリエチレン系重合体（C）を、ポリエチレンテレフタレート系重合体（A）100重量部に対して2～20重量部、好ましくは3～15重量部配合する。上記ポリエチレン系重合体が2重量部より少ないと耐衝撃性の改善効果は小さく、また20重量部を超えると剛性や耐熱性が低下するので好ましくない。また、メルトフローレートが5を超えると耐衝撃性を改善する効果は小さい。ポリエチレン系重合体としては、エチレン-プロピレン共重合体、エチレン-プロピレン-ジエンモノマー共重合

体、エチレンーブチレン共重合体、エチレンーエチルアクリレート共重合体、エチレンービニールアセテート共重合体、エチレンーメチルメタクリレート共重合体、これらのメタクリル酸共重合体、アクリル酸共重合体、メタクリル酸金属塩共重合体、アクリル酸共重合体、無水マレイン酸変性体、エポキシ変性体などが挙げられる。特に、エチレンーメタクリル酸共重合体、エチレンーメタクリル酸塩共重合体、ポリエチレン又はエチレン共重合体の無水マレイン酸変性体、ポリエチレン及び／又はエチレン共重合体のエポキシ変性体が好ましい。

【 0 0 1 5 】

また、本発明においては、メルトフローレートが5～100のポリプロピレン系重合体(D)を、ポリエチレンテレフタレート系重合体100重量部に対して3～20重量部、好ましくは5～10重量部配合する。上記ポリプロピレン系重合体としては、プロピレンーブチレン共重合体、プロピレンーエチルアクリレート共重合体、プロピレンーメチルメタクリレート共重合体、またこれらのアクリル酸、メタクリル酸、メタクリル酸塩、無水マレイン酸変性体、エポキシ変性体が好ましい。メルトフローレートが5未満では流動性や離型性が不足で連続成形ができなく、また、100を超えると表面にフローマークが発生し商品性を損なう。一般に溶融粘度の高いポリエチレンテレフタレート系重合体を使用した場合、流動性が不足して成形が困難になるが、本発明の樹脂組成物では、溶融粘度が高いポリエチレンテレフタレートを使用しても流動性が高く大型成形品を成形することができる。また、溶融粘度が低いポリプロピレン系重合体は、溶融成形時には高い流動性があるにもかかわらず、使用時は剛性を有するので本発明の目的達成に有効であり好ましい。

【 0 0 1 6 】

自動車などの輸送用機械、特に断面積が 1000 cm^2 以上ある自動車などのエンジン周辺の大型部品を製造する樹脂組成物の場合、高い流動性や耐熱性と耐落下衝撃性という相反する高い物性が要求される。この要求性能は、樹脂組成物の物性値としては、曲げ破壊歪み率が3.5%以上で且つ荷重たわみ温度が 180°C 以上必要であることが分かった。これらは、メルトフローレートが5以下のポリエチレン系重合体と、メルトフローレートが5～100のポリプロピレン系

重合体と特定量の無機強化材を配合することで両立できることが判明した。特定の組み合わせがこの要求を満たす理由は明確でないが無機強化材により衝撃時の変形を防止しポリエチレン系重合体が衝撃吸収体として作用する相乗効果を示し、一方、熔融粘度が低いポリプロピレン系重合体が金型面との流動抵抗を低下させることで、耐衝撃性を損なうことなく流動性もよいためではないかと考察される。

【0017】

さらに、本発明のエンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物には、常用の添加剤、例えば熱安定剤、耐候剤、耐加水分解剤、顔料などを添加してもよい。熱安定剤としては、ヒンダードフェノール系、チオエーテル系、ホスファイト系などやこれらの組み合わせを挙げることができる。耐候剤としてはカーボンプラック、ベンゾフェノン系、トリアゾール系、ヒンダードアミン系などが挙げることができる。また、耐加水分解剤としてはカルボジイミド、ビスオキサゾリン、エポキシ、イソシアネート化合物などを挙げることができる。顔料としてはポリエチレンテレフタレート系重合体が常用する耐熱顔料を使用することができる。

【0018】

本発明のエンジン周辺用ポリエステル系樹脂組成物は、前記の各構成成分を単軸押出機、2軸押出機やニーダーなどの装置を用いて混練することにより製造することができる。用いる混練機の種類や混練条件についての制限は特にはない。

【0019】

前記方法などによって得られた本発明のエンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物を成形品に成形する方法としては、特に限定されるものではないが、射出成形法によるのが一般的である。なお、エンジン周辺部品の形状は特に限定されないが箱型、キャップ型など任意に設計された形状のものに容易に成形することができる。また、得られたエンジン周辺部品は成形材料に顔料を配合した原着法や塗装により着色されたり、ホットスタンプやスクリーン印刷され、ボルト締めなどの方法でエンジンなどにセットされる。

【0020】

【実施例】

以下、実施例を用いて本発明を具体的に説明する。なお明細書中における特性、評価は以下の方法により測定した。

【 0 0 2 1 】

1) メルトフローレート

A S T M - D 1 2 3 8 により、2 3 0 ℃、2 1 . 2 N の荷重下に調節されたメルトインデクサー（東洋精機社製）にて測定した。

【 0 0 2 2 】

2) 曲げ破壊歪み

2 3 ℃ 5 0 % R H の環境下で、射出成形されたテストピース（1 3 . 0 × 1 2 7 . 0 × 6 . 4 m m ）について、A S T M - D 7 9 0 により曲げ試験行い、荷重-たわみを自動記録する。破壊したときのたわみ d （m m ）から次式で計算し求めた。

$$r \text{ (\%) } = 6 0 0 t d / L^2$$

ここで、t : 厚さ（m m ）、L : スパン長（m m ）

【 0 0 2 3 】

3) 荷重たわみ温度

2 3 ℃ 5 0 % R H の環境下で、射出成形されたテストピース（1 3 . 0 × 1 2 7 . 0 × 6 . 4 m m ）について、A S T M - D 6 4 8 により、0 . 4 6 M P a の応力を負荷して自動昇温装置付きヒートデストーションテスターにて測定した。

【 0 0 2 4 】

4) エンジンカバー製品試験

①流動性

バレル温度を 2 6 0 - 2 6 0 - 2 6 0 ℃ に設定した型締 1 0 0 0 トンの射出成形機と、1 2 0 ℃ に調節されたエンジンカバー成形品（4 0 0 × 5 5 0 × 8 0 m m 、厚さ 2 m m ）（図 1 ）用金型を使用して、成形サイクル 4 5 秒にて成形し、流動性を評価した。

○ : 充填可能で外観良好

× : ショートショット又は外観不良

【 0 0 2 5 】

②落下テスト

①で得られたエンジンカバーを、 -30°C 、 $50\% \text{RH}$ に調節された試験室の鉄板上へ1 mの高さから意匠側（表側）を下向きに自然落下させ、エンジンカバーの破損の有無で判断した。

○：破損無し

×：クラック、ワレ、破損あり

【0026】

③耐熱性

①で得られたエンジンカバーについて、 130°C にて300時間処理した後の外観を検査した。

○：著しい変形又は変色がない。

×：著しい変形又は変色がある。

【0027】

（比較例1～6、実施例1～9）

表1に示す重合体、無機強化材の中から組み合わせ選択し、それらの所定量（重量部）を計量後予備混合した。この予備混合体それぞれを、シリンダー温度をホッパー側から $265-270-270^{\circ}\text{C}$ に調節した直径30 mm Φ の同軸2軸押出機のホッパーに投入し、スクリュウ回転数100 rpmにて溶融混練してペレットを得た。得られた各々のペレットを 140°C で3時間乾燥し、シリンダー温度を $260-260-260^{\circ}\text{C}$ に設定した射出成形機と表面温度 120°C の金型を使用して評価した。その結果を表1に示す。

【0028】

【表1】

	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6
PETI	100	100	100	100	100	100
GF		15	3	3	3	3
タルク	15		7	7	7	7
PE共重合体I			4			4
PE共重合体II						
PE共重合体III					4	
PP共重合体I				7.5	7.5	
PP共重合体II						
PP共重合体III						
PP共重合体IV						
PP共重合体V						7.5
テストピース試験	曲げ強さ(MPa)	90	130	110	105	100
	曲げ破壊歪み(%)	2.7	2.1	4.1	3.3	3.1
	荷重たわみ温度(℃)	170	240	210	206	195
エンジンカバー製品試験	流動性	×	×	×	○	×
	落下テスト	×	○	○	×	○
	耐熱性	×	○	○	○	○

【0029】

【表 2】

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6	実施例 7	実施例 8	実施例 9
PETI	100	100	100	100	100	100	100	100	100
GF	3	3	10	10	10	3	3	3	30
タルク	7	7	3	3	3	7	7	7	1
PE共重合体I	2	4	2	4	4		4	4	10
PE共重合体II						4			
PE共重合体III									
PP共重合体I	7.5	7.5	7.5	10		7.5			5
PP共重合体II					10				
PP共重合体III							7.5		
PP共重合体IV								7.5	
PP共重合体V									
テストピース試験	曲げ強さ(MPa)	103	105	127	123	118	106	108	152
	曲げ破壊歪み(%)	4.4	4.7	3.9	4.2	4.9	4.6	4.9	3.8
	荷重たわみ温度(℃)	205	202	235	236	230	205	206	225
エンジンカバー製品試験	流動性	○	○	○	○	○	○	○	○
	落下テスト	○	○	○	○	○	○	○	○
	耐熱性	○	○	○	○	○	○	○	○

【 0 0 3 0 】

表中の略号は次の通りである。

- ・ P E T : ポリエチレンテレフタレート (ゲルマニウム触媒、極限粘度0.70)
- ・ G F : ガラス繊維 (3mmカット)
- ・ P E 共重合体I : エチレン-プロピレン-ゲリシジルメタクリレート共重合体 (3.0)
- ・ P E 共重合体II : エチレン-プロピレン-メタクリル酸変性体 (MFR1.8)
- ・ P E 共重合体III : エチレン-エチルアクリレート-メチルメタクリレート (MFR22)
- ・ P P 共重合体I : ポリプロピレン-無水マレイン酸変性体 (MFR75)
- ・ P P 共重合体II : ポリプロピレン-ゲリシジルメタクリレート変性体 (MFR60)
- ・ P P 共重合体III : ポリプロピレン-無水マレイン酸変性体 (MFR30)
- ・ P P 共重合体IV : ポリプロピレン-無水マレイン酸変性体 (MFR9)
- ・ P P 共重合体V : プロピレン-ブチレン-無水マレイン酸変性体 (MFR0.7)

【 0 0 3 1 】

【発明の効果】

本発明のエンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物によれば、成形性、外観に優れ、耐衝撃性、軽量性、耐熱性、低そり性、防音性を有し、熱による変色や吸水による寸法変化が小さいエンジン周辺部品用ポリエステル樹脂組成物を得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

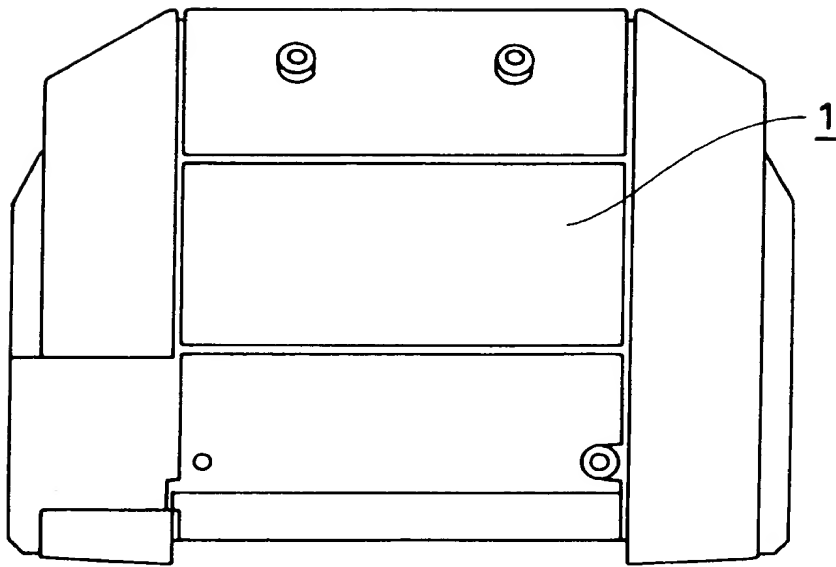
エンジンカバー製品試験に用いるエンジンカバーの側面図である。

【符号の説明】

- 1 エンジンカバー

【書類名】 図面

【図 1】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 成形性、外観に優れ、耐衝撃性、軽量性、耐熱性、低そり性、防音性を有し、熱による変色や吸水による寸法変化が小さいエンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物を提供すること。

【解決手段】 ポリエチレンテレフタレート系重合体（A）100重量部に対して、無機強化材料（B）5～70重量部、メルトフローレートが5以下のポリエチレン系重合体（C）2～20重量部、メルトフローレートが5～100のポリプロピレン系重合体（D）3～20重量部を含有するポリエステル系樹脂組成物であって、曲げ破壊歪みが3.5%以上、荷重たわみ温度が180℃以上であることを特徴とする。

【選択図】 図1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000003160]

1. 変更年月日	1990年 8月10日
[変更理由]	新規登録
住 所	大阪府大阪市北区堂島浜2丁目2番8号
氏 名	東洋紡績株式会社

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [0 0 0 2 4 1 4 6 3]

1. 変更年月日 1 9 9 0 年 8 月 9 日

[変更理由] 新規登録

住 所 愛知県西春日井郡春日町大字落合字長畑 1 番地
氏 名 豊田合成株式会社